





NEW ORGANIC METALLIC LUMINESCENT MATERIAL AND ORGANIC ELECTRIC LUMINESCENT ELEMENT CONTAINING THE SAME

Patent number:

JP2000053957

Publication date:

2000-02-22

Inventor:

KIN REIKEI; RI SAIKYO

Applicant: Classification:

- international:

KOTO GIJUTSU KENKYUIN KENKYU KUMIAI

C09K11/06; C07D263/56; C07D277/64; C07D293/10; C07D293/12; H05B33/10; H05B33/14

- european:

Application number: JP19990176775 19990623

Priority number(s):

Also published as:

JP2001302646 (A) JP2001288464 (A)

JP2001288463 (A) JP2000053957 (A)

Abstract of JP2000053957

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain the subject new material having a luminescent property of blue, green or red light by reacting a hydroxyquinoline sulfonic acid metallic complex with a metallic complex by evaporation, or the like.

SOLUTION: This luminescent material is 8-hydroxyquinoline-5-sulfonate metallic complex of formula II and is obtained by reacting 8-hydroxyquinoline-5- sulfonic acid metallic complex expressed by formula I (M2 is Li, Na, K, Ca, Be, Zn, Cd, Ti, Cu, Pb or the like; R is H or a 1-10C alkyt; A is H or a halogen) with a metallic complex of the formula: M3Z (M3 is Li+, Na+, K+, CS+, Ca2+, Zn2+, Al3+, Mg2+, Mn2+ or the like; Z is a halogen or OH) by vapor deposition or a coating reaction.

Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号 特開2000-53957 (P2000-53957A)

(43)公開日 平成12年2月22日(2000.2.22)

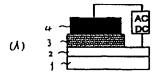
						-			
(51) Int.Cl. ⁷	識別記号 ·		FΙ			テーマコード(参考)			
C09K 11/06	660		C09K	11/06		660			
C 0 7 D 263/56	C 0 7 D 263/56								
277/64	277/64								
293/10	293/10								
293/12	293/12								
	!	審查蘭求	有 請求	項の数5	OL	(全 9 頁)	最終頁に続く		
(21)出願番号	特顧平11-176775		(71)出願/	598077	897				
				社団法	人高等	技術研究院研	开究組合		
(22)出顧日	平成11年6月23日(1999.6.23)			大韓民	国、ソ	ウル特別市中	中区南大門路 5 街		
				526番埠	t				
(31)優先権主張番号	1998 - 23645		(72)発明	1 金 澤	圭				
(32)優先日	平成10年6月23日(1998.6.23)		大韓民国、釜山広域市614-110釜山鎖区開						
(33)優先権主張国	韓国 (KR)			琴洞44	5番地第	所 マエルジ	ー・アパートメ		
				ント209-1701					
			(72)発明	子 李	鄭				
		İ	大韓民国、京畿道463-500城南市盆唐区九						
			美洞63-65番地カチマウル410-1004 (74)代理人 100058479						
				弁理士	鈴江	武彦 (夕	\$5名)		

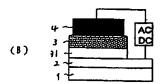
(54) 【発明の名称】 新規な有機金属発光物質およびそれを含む有機電気発光素子

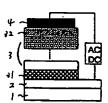
(57)【要約】

【課題】 青色、緑色または赤色光の発光特性を有し、 熱安定性が高い新規な有機金属化合物、およびそれを含 む有機電気発光素子を提供する。

【解決手段】 青色、緑色または赤色光の発光特性を有する、一般式(I)ないし(V)の化合物からなる群から選ばれた有機金属発光物質。







【特許請求の範囲】

【請求項1】 一般式(I)ないし(V)の化合物から なる群から選ばれた有機金属発光物質。

【化1】

$$M = \begin{pmatrix} Y \\ X \\ R \end{pmatrix}$$

【化3】

【化4】

【化5】

前記式で、M¹およびM⁴は、互いに独立的にLi、N a, K, Zr, Si, Ti, Sn, Cs, Fr, Rb,

Hf、Pr、Pa、Ge、Pb、TmおよびMdからな る群から選ばれた1価または4価金属であり; M2は、 Li、Na、K、Ca、Be、Ga、Zn、Cd、A 1、Cs、Fr、Rb、Be、Mg、Mn、Ti、C u、Zr、Si、Hf、Pr、Pa、Ge、Sn、P b、TmおよびMdからなる群から選ばれた1価、2 価、3価または4価金属であり; M^3 は、 Li^+ 、Na+, K+, Cs+, Fr+, Rb+, Ca2+, Be2+, G a³⁺、Zn²⁺、Al³⁺、Mg²⁺、Mn²⁺、Ti²⁺および Cu2+からなる群から選ばれ; Rは、水素またはC1-10 アルキル基であり; XおよびYは、互いに独立的に水 素、C1、F、I、BrまたはSO3Hであり; Aは、 水素、F、C1、BrまたはIであり; Bは、O、S、 SeまたはTeであり; Dは、OまたはSであり; n は、1ないし4の整数である。

【請求項2】 一般式 (VI) の8-ヒドロキシキノリン -5-スルホン酸金属錯体および一般式 (VII) の金属 錯体の各々を蒸着またはコーティングして反応させる工 程によって、一般式(II)の8-ヒドロキシキノリン-5-スルホナト金属錯体を製造する方法。

【化6】

【化7】

【化8】

(VI)

前記式で、M2、M3、Rおよびnは請求項1で定義した 通りであり、Zはハロゲン原子またはヒドロキシ基であ

【請求項3】 請求項1に記載の有機金属発光物質を有 機発光層に含む有機電気発光素子。

前記有機金属発光物質が単独で、または 高分子もしくは無機化合物との混合物の形態、または高 分子中のドーパントの形態で存在することを特徴とする 請求項3に記載の有機電気発光素子。

【請求項5】 前記有機発光層が、スピンコーティン グ、蒸着法、真空熱蒸着法、スパッタリングまたは電子 ビーム蒸着法によって蒸着されたことを特徴とする請求 項3に記載の有機電気発光素子。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、新規な有機金属発 光物質に関し、さらに詳細には、青色、緑色または赤色 光の発光特性を有し、熱安定性が高い新規な有機金属化 合物、およびそれを含む有機電気発光素子に関する。

[0002]

【従来の技術】通常の有機電気発光素子用有機金属化合物は、主として亜鉛およびアルミニウムのような2価または3価金属の錯体である。

【0003】たとえば、有機金属発光物質として米国特許第5,456,988号には、亜鉛、アルミニウムおよびマグネシウムの8-ヒドロキシキノリンの錯体、米国特許第5,837,390号には、2-(o-ヒドロキシフェニルベンゾオキサゾール)のマグネシウム、亜鉛およびカドミウムなどの金属との錯体、特開平7-133483号には、2-(o-ヒドロキシフェニルベンゾオキサゾール)のマグネシウムおよび銅のような2価金属との錯体、米国特許第5,529,853号ならびに特開平6-322362号、特開平8-143548号、および特開平10-072580号には、10-ヒドロキシベンゾ[10]キノリンの2価または3価金属との錯体がそれぞれ開示されている。

【0004】このように2価または3価金属を含む有機 金属発光物質は、比較的に弱いリガンドが金属結合と長 い共役構造を有するので、比較的熱安定性が低く、緑色 および赤色光を発するが、青色発光はしない。

【0005】したがって、改善された熱安定性および青 色発光をするなどの改善された発光特性を有する有機発 光物質の開発が要求されている。

[0006]

【発明が解決しようとする課題】したがって、本発明の 目的は、青色、緑色または赤色光の発光特性を有する新 規な有機金属発光物質およびそれを含む有機電気発光素 子を提供することである。

[0007]

【課題を解決するための手段】前記目的を達成するため に本発明では、一般式(I)ないし(V)の化合物から なる群から選ばれた有機金属化合物が提供される。

[8000]

【化9】

$$M = \begin{bmatrix} Y & X \\ N & X \end{bmatrix}_{n}$$
 (I)

[0009]

【化10】

【化11】

[0011]

【化12】

$$\begin{array}{c|c}
R & R \\
R & N & N \\
N & N & R \\
R & R & n
\end{array}$$
(IV)

[0012]

【化13】

$$\begin{array}{c|c}
R & R \\
R & R \\
R & R
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
R & R \\
R & R
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
R & R \\
R & R
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
R & (V)
\end{array}$$

【0013】前記式で、 M^1 および M^4 は、互いに独立的にLi、Na、K、Zr、Si、Ti、Sn、Cs、F

(4) 開2000-53957 (P2000-539JL

r、Rb、Hf、Pr、Pa、Ge、Pb、Tmおよび Mdからなる群から選ばれた1価または4価金属であり; M²は、Li、Na、K、Ca、Be、Ga、Zn、Cd、Al、Cs、Fr、Rb、Be、Mg、Mn、Ti、Cu、Zr、Si、Hf、Pr、Pa、Ge、Sn、Pb、TmおよびMdからなる群から選ばれた1価、2価、3価または4価金属であり; M³は、Li*、Na*、K*、Cs*、Fr*、Rb*、Ca²*、Be²*、Ga³*、Zn²*、Al³*、Mg²*、Mn²*、Ti²*およびCu²*からなる群から選ばれ; Rは、水素またはC1-10アルキル基であり; XおよびYは、互いに独立的に水素、Cl、F、I、BrまたはSO₃Hであり; Aは、水素、F、Cl、BrまたはIであり; Bは、O、S、SeまたはTeであり; Dは、OまたはSであり; nは、1ないし4の整数である。

[0014]

【発明の実施の形態】以下、本発明をさらに詳細に説明 する。

【0015】本発明の有機金属発光物質は、前記一般式(I)の8-ヒドロキシキノリン金属錯体、前記一般式(II)の8-ヒドロキシキノリナト-5-スルホナト金属錯体、前記一般式(III)のベンゾオキサゾールまたはベンズチアゾール金属錯体、前記一般式(IV)のベンゾトリアゾール金属錯体および前記一般式(V)のベンゾキノリン金属錯体を含む。

【0016】本発明の有機金属発光物質のうち好ましい 化合物を表1に示す。

[0017]

【表1】

化学式 番号	化合物 番号	М*	M³	n	R	最大発光 波長(nm)	発光色
(1)	1	Li		1	н	495	青緑色
	2	Li	_	1	CH,	490	青緑色
	3	Zr	-	4	н	535	明るい 緑色
	4	Zr	1	4	CH ₃	532	明るい 緑色
(II) -	5	Li	Li	1	н	460	青色
	6		Na			462	青色
	7	.Na	Li	1		460	青色
	8		Na			463	青色
	9	Zn	Li	2		461	青色
	10		Na			464	青色
	11	Al	Li	3		462	青色
	12		Na			465	青色
(皿)	13	Li		1	н	450	青色
	14	Na	_	1	н	455	青色
(IV)	15	Li	_	1	н	508	緑色
	16	Na	_	1	н	512	緑色
(V)	17	Li	_	1	н	515	禄色
	18	.Na	-	1	Н	650	赤色

註) M*は、M¹、M²またはM⁴である。

【0018】前記本発明の有機金属化合物は、適当な溶媒中でリガンドとして作用する有機化合物と適当な金属化合物を反応させることによって製造することができる。

【0019】本発明に使用することができる溶媒としては、水、エタノール、メタノール、プロパノールなどがある。

【0020】本発明の有機金属発光化合物の製造に使用

することができる化合物の例は、LiOH、NaOH、 KOH、NaCl、KCl、LiCl、ZrCl₄、S nCl₄、TiCl₄、SiCl₄、BeCl₂、MgCl₂、AlCl₃、CaCl₂、ZnCl₂などがある。

【0021】本発明にリガンドとして使用することができる有機化合物の例は、2-(2-ヒドロキシフェニル)ベンゾオキサゾール、8-ヒドロキシキノリン、8-ヒドロキシキノリンー5-スルホン酸、2-(2-ベンゾトリアゾリル)-p-クレゾール、10-ヒドロキシベンゾキノリンなどを含む。

【0022】本発明の有機金属化合物を製造するための有機および金属化合物の反応は、nによって決定されるモル当量比で、25ないし100℃で、1ないし24時間反応させることにより行うことができる。

【0023】一般式 (II) の8-ヒドロキシキノリン-5-スルホナト金属誘導体の製造時には、8-ヒドロキ シキノリン-5-スルホン酸とM2化合物を反応させて 一般式 (VI) の8-ヒドロキシキノリン-5-スルホナト誘導体を得る。次いで、一般式 (VI) の化合物をM3 化合物と反応させて一般式 (II) の8-ヒドロキシキノリン-5-スルホナト誘導体を得る。

【0024】代替的に、一般式(II)の8-ヒドロキシキノリン-5-スルホナト金属誘導体は乾式工程によって製造することができる。すなわち、一般式(VI)の化合物と一般式(VII)の化合物をそれぞれ基板上に蒸着またはコーティングした後、減圧(約10-6トール)下、150ないし450℃でin situ反応させてもよい。反応式1のスルホン酸基の金属化反応が起るに従って発光は青色に推移(blue shift)する。たとえば、一般式(VI)の化合物の最大発光波長は510nmである反面、一般式(II)の化合物の最大発光波長は460nmである。

[0025]

【化14】

【0026】前記式で、M²、M³およびnは前記で定義 した通りであり、Zはハロゲン原子またはヒドロキシ基 である。

【0027】本発明の有機金属錯体は、有機発光物質としてだけでなく、発光ドーピング物質(luminescent doping material)として使用できる。たとえば、発光効率のよい青色有機発光層にこの錯体を2%程度の少量ドーピングすれば、発光色が青色から薄い青色または緑色に変わる。したがって、発光波長を調節することが可能な効率のよい電気発光素子を製造することができる。

【0028】本発明の有機発光素子は、単一層の形態、または正孔輸送層もしくは電子輸送層とともに二重層または多重層の形態の有機薄膜を含む構造を有していてもよい。この際、本発明の有機金属発光物質は単独で、または高分子もしくは無機化合物と共に、または高分子にドーピングして得られる蛍光体薄膜として使用することができる。

【0029】本発明の電気発光素子の一態様は図1

(A)に示すような単一有機層を有する。前記素子は、ガラス基板1、陽極透明電極層2であるインジウムースズー酸化物(以下、ITOという)層、本発明の有機発光物質を含有する有機発光層3および金属電極(陰極)層4が順次的に積層された構造を有する。本発明の素子の他の態様は図1(B)に示すように追加的な正孔輸送

層31を有するか、図1(C)に示すように追加的な電子輸送層32を更に有していてもよい。本発明の電気発光素子は、直流または交流で動作するが、直流を用いることが好ましい。

【0030】本発明の有機発光層は、スピンコーティングのような湿式方法および蒸着、真空熱蒸着、スパッタリングおよび電子ピーム蒸着法のような乾式方法によって形成することができる。

【0031】本発明の新規な有機金属発光物質は、青色、緑色または赤色発光が可能であり、1価の金属を含む錯体の場合は高温でも安定であり、青色発光などの優れた発光特性を有する。

[0032]

【実施例】以下、本発明を下記実施例によってさらに詳細に説明する。ただし、下記実施例は本発明を例示するのみであり、本発明の範囲を制限しない。

【0033】実施例1:化合物13の製造

2-(2-ヒドロキシフェニル)ベンゾオキサゾールと 水酸化リチウムを1:1のモル比でエタノール250m 1に加えて78℃で4時間還流した。反応混合物を沪過 し、溶媒および水分を減圧下で除去して目的とする一般 式(VIII)の2-(2-ヒドロキシフェニル)ベンゾオ キサゾールーリチウム錯体(化合物13)を得た。

[0034]

【化15】

(6) 開2000-53957 (P2000-539JL

【0035】図2に、前記で製造した錯体の発光スペクトルを示す。

【0036】実施例2

ITOを陽極透明電極としてコーティングして得られた

ITOガラスを一定な形にフォトリソグラフィーし、パターン化されたITOガラスを非リン系界面活性剤、アセトンおよびエタノールを含む溶液で洗浄した。 【0037】次いで、一般式(IX)のポリエーテルイミ

[0038]

【化16】

【0040】前記正孔輸送層上に、発光物質として前記実施例1で製造した2-(2-ヒドロキシフェニル)ベンゾオキサゾールリチウム錯体を約20nm厚さに真空蒸着して有機発光層を形成した後、アルミニウムを約500nm厚さに蒸着して金属電極層を形成した。次いで、素子をバッケージングして有機電気発光素子を製造した。

【0041】前記製造された有機電気発光素子の発光特性を図3、4および5に示す。図3は、本発明によって製造された有機電気発光素子の印加電圧による電流密度 (A/m^2) (3-1) および電気発光強度 (c d/ m^2) (3-2) であって、電流注入は約6 V程度から始まるが、ターンオン電圧は約7 ないし8 Vであり、約11 Vの電圧で500 c d/ m^2 の明るさを示した。

【0042】図4(A)および4(B)は、各々前記有機電気発光素子の電流密度(A/m²)および電気発光強度(cd/m²)による発光効率曲線であって、電流密度が約200A/m²を超える領域では発光効率が約1.21m/Wと一定であった。

【0043】図5は、本発明によって製造された有機電気発光素子の種々の印加電圧(8、9、10、11、12および13V)における電気発光スペクトル結果であって、主ピークは約456nmにおいて認められ、430および487nmにおいてショルダー(shoulder)ピークが認められた。全体的に見える電気発光色は青色であった。

【0044】実施例3:化合物5および6の製造

8-ヒドロキシキノリン-5-スルホン酸と水酸化リチウムを1:1のモル比でエタノール250m1に加えて78℃で4時間還流した。反応混合物を沪過して過剰量の水に溶解した。次いで、水分を減圧下で除去して8-ヒドロキシキノリナト-(5-スルホン酸)-リチウム錯体(LiQSA)を得た。

【0045】このように得られたしiQSAと(またはNaOH)を1:1のモル比でエタノール100mlに加えて室温で1時間反応させた。反応混合物から沈澱物を分離し、減圧下で24時間乾燥して最終生成物である8-ヒドロキシキノリナト(5-スルホナトリチウム塩)-リチウム錯体(LiQSLi、化合物5)および8-ヒドロキシキノリンー(5-スルホナトナトリウム塩)-ナトリウム錯体(LiQSNa、化合物6)を各々得た。合成された錯体の最大発光波長および発光色を表1に示す。

【0046】実施例4:化合物7および8の製造 8-ヒドロキシキノリン-5-スルホン酸と水酸化ナト リウム(NaOH)を1:1のモル比でエタノール25 0m1に加えて78℃で4時間還流した。反応混合物を 沪過して過剰量の水に溶解した。次いで、水分を減圧下 で除去して8-ヒドロキシキノリナトー(5-スルホナト)-ナトリウム錯体(NaQSA)を得た。

【0047】このように得られたNaQSAとLiOH (またはNaOH)を1:1のモル比でエタノール10 Om1に加えて室温で1時間反応させた。反応混合物から沈澱物を分離し、減圧下で24時間乾燥して最終生成

(7) 開2000-53957 (P2000-539JL

物である8-ヒドロキシキノリナト(5-スルホナトリチウム塩)-ナトリウム錯体(NaQSLi、化合物7)および8-ヒドロキシキノリナト(5-スルホナトナトリウム塩)-ナトリウム錯体(NaQSNa、化合物8)を得た。合成された錯体の最大発光波長および発光色を表1に示す。

【0048】実施例5:化合物9および10の製造8-ヒドロキシキノリン-5-スルホン酸と塩化亜鉛(ZnCl2)を2:1のモル比でエタノール250mlに加えて78℃で4時間還流した。反応混合物を沪過して過剰量の水に溶解した。次いで、水分を減圧下で除去してビス(8-ヒドロキシキノリナト-5-スルホン酸)-亜鉛錯体(Zn(QSA)2)を得た。

【0049】このように得られた $Zn(QSA)_2$ としiOH(またはNaOH)を1:2のモル比でエタノール100m1に加えて室温で1時間反応させた。反応混合物から沈澱物を分離し、減圧下で24時間乾燥して最終生成物であるビス(8-ヒドロキシキノリナト-5-スルホナトリチウム塩)-亜鉛錯体($Zn(QSLi)_2$ 、化合物9)およびビス(8-ヒドロキシキノリナトー(5-スルホナトナトリウム塩)-亜鉛錯体($Zn(QSNa)_2$ 、化合物10)を得た。合成された錯体の最大発光波長および発光色を表1に示す。

【0050】実施例6:化合物11および12の製造8-ヒドロキシキノリン-5-スルホン酸とA1C12を3:1のモル比でエタノール250m1に加えて78℃で4時間還流した。反応混合物を沪過して過剰量の水に溶解した。次いで、水分を減圧下で除去してトリス(8-ヒドロキシキノリナト-5-スルホン酸)アルミニウム(A1(QSA)3)を得た。

【0051】このように得られた $A1(QSA)_3$ とLiOH(またはNaOH)を1:3のモル比でエタノール100mlに加えて室温で1時間反応させた。反応混合物から沈澱物を分離し、減圧下で24時間乾燥して最終生成物であるトリス(8-ヒドロキシキノリン-5-スルホナトリチウム塩)アルミニウム錯体($A1(QSLi)_3$ 、化合物11)およびトリス(8-ヒドロキシキノリン-(5-スルホナトナトリウム塩)アルミニウム錯体($Zn(QSNa)_3$ 、化合物12)を得た。合成された錯体の最大発光波長および発光色を表1に示す。

【0052】実施例7:化合物14の製造 2-(2-ヒドロキシフェニル)ベンゾオキサゾールと NaOHを1:1のモル比でエタノール250m1に加 えて78℃で4時間還流した。反応混合物を沪過し、残 存溶媒および水分を減圧下で除去して目的とする2-(2-ヒドロキシフェニル)ベンゾオキサゾールーナト リウム錯体(化合物14)を得た。合成された錯体の最 大発光波長および発光色を表1に示す。

【0053】実施例8:化合物15および16の製造

2-(2-ヒドロキシベンゾトリアゾール)-p-クレゾールとしiOH(またはNaOH)を1:1のモル比でエタノール250m1に加えて78℃で4時間還流した。反応混合物を沪過し、残存溶媒および水分を減圧下で除去して目的とする2-(2-ヒドロキシベンゾトリアゾール)p-クレゾールーリチウム錯体(LiBTZC、化合物15)および2-(2-ヒドロキシベンゾトリアゾール)-p-クレゾールーナトリウム錯体(NaBTZC、化合物16)を製造した。合成された錯体の最大発光波長および発光色を表1に示す。

【0054】実施例9:化合物17および18の製造10-ヒドロキシキノリンとLiOH(またはNaOH)を1:1のモル比でエタノール250mlに加えて78℃で4時間還流した。反応混合物を沪過し、残存溶媒および水分を減圧下で除去して目的とする10-ヒドロキシキノリンーリチウム錯体(LiBQ、化合物17)および10-ヒドロキシキノリンーナトリウム錯体(NaBQ、化合物18)を製造した。合成された錯体の最大発光波長および発光色を表1に示す。

【0055】実施例10:化合物3の製造

8-ヒドロキシキノリンとZrC14を4:1のモル比でエタノール250mlに加えて78℃で4時間還流した。反応混合物を沪過し、水分を減圧下で除去して最終化合物であるテトラ(8-ヒドロキシキノリナト)ージルコニウム錯体(ZrQ4、化合物3)を得た。合成された錯体の最大発光波長および発光色を表1に示す。

[0056]

【発明の効果】前記結果から分かるように、本発明の有機金属発光物質は、高効率な青色、緑色または赤色光の発光特性を有する。したがって、これを含有する有機電気発光素子は高効率で可視光線領域のいずれの色相も実現することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】単一層、二重層および多重層構造の有機薄膜を 有する、本発明によって製造された有機電気発光素子の 構造を示す図。

【図2】本発明の実施例1の有機金属発光物質の発光スペクトルを示す図。

【図3】本発明の実施例2の有機電気発光素子の印加電 圧による電流密度曲線および電気発光強度曲線を示す 図

【図4】本発明の実施例2の有機電気発光素子の電流密度および電気発光強度による発光効率曲線を示す図。

【図5】本発明の実施例2の有機電気発光素子の種々の 印加電圧における電気発光スペクトルを示す図。

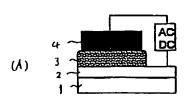
【符号の説明】

- 1…ガラス基板
- 2…陽極透明電極層
- 3…有機発光層
- 4…金属電極(陰極)層

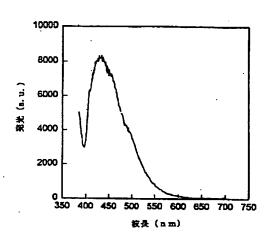
31…正孔翰送層

3 2…電子輸送層

【図1】

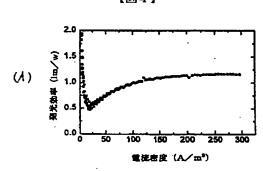


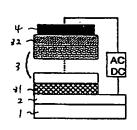




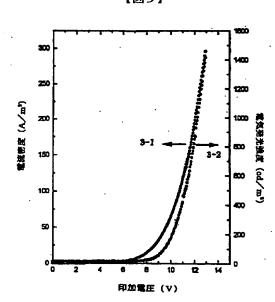
(8)

【図4】

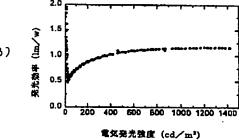




【図3】

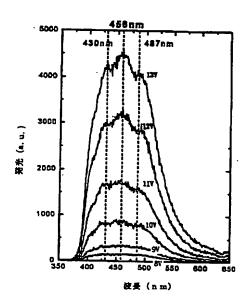


(B)



(9) 開2000-53957 (P2000-539JL

【図5】



フロントページの続き

(51) Int. Cl. 7 H O 5 B 33/10 33/14 識別記号

F I H O 5 B 33/10 33/14 テーマコード(参考)

В